

明 細 書

ダイヤモンド工具、合成単結晶ダイヤモンドおよび単結晶ダイヤモンドの 合成方法ならびにダイヤモンド宝飾品

技術分野

- [0001] 本発明は、ダイヤモンド工具、合成単結晶ダイヤモンドおよび単結晶ダイヤモンドの合成方法ならびにダイヤモンド宝飾品に関し、特に、シャープな刃先を有し、耐摩耗性や耐欠損性に優れ、かつ品質の安定した、ダイヤモンドバイトやダイヤモンドナイフや、耐摩耗性に優れたダイヤモンドダイスやドレッサーやスタイラスなど、優れた性能を有するダイヤモンド工具、結晶中にニッケルを置換型で含有する合成単結晶ダイヤモンドおよび単結晶ダイヤモンドの合成方法、結晶中にホウ素とニッケルを原子置換型で含有する合成単結晶ダイヤモンドおよび単結晶ダイヤモンドの合成方法、鮮やかな色を呈するダイヤモンド宝飾品に関する。

背景技術

- [0002] 従来の単結晶ダイヤモンド工具は、天然ダイヤモンドの中から適当な原石を選択し、製作されたものであった。また、一部では、窒素を不純物として含む人工合成単結晶ダイヤモンド(Ib型)が使用されていた。
- [0003] ダイヤモンドは、非常に硬度が高いこと、非常に熱伝導率が良好なこと、屈折率が大きいため美しく輝くこと等のため、工業用や宝飾用に広く利用されている。しかしながら、天然産のものは非常に高価であるため、工業的に製造されたダイヤモンドが工業用の用途を中心に広く用いられている。このような工業的に製造されたダイヤモンドは、超高压高温下で結晶を成長させる温度差法等により合成して製造されるのが一般的である(特許文献1〜特許文献6)。
- [0004] また、近年の産業の高度化の下、高度の耐摩耗性や均一な耐摩耗性を有している等の特殊な機械的、物理的性質が天然のものより優れた合成単結晶ダイヤモンドの開発もなされている(特許文献7〜9)。
- [0005] さらに、半導体特性あるいは導電性等本来ダイヤモンドが有していない性質を有する合成単結晶ダイヤモンドの開発もなされている(特許文献10)。

特許文献1:特開昭60-12747号公報

特許文献2:特開平5-137999号公報

特許文献3:特開平5-138000号公報

特許文献4:特開平5-329356号公報

特許文献5:特開平6-182182号公報

特許文献6:特開平6-182184号公報

特許文献7:特開平3-131407号公報

特許文献8:特開平3-228504号公報

特許文献9:特開平7-116494号公報

特許文献10:特開平5-200271号公報

非特許文献1:Sumiya et al., Diamond and Related Materials, 5, 1359(1996)

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0006] 天然ダイヤモンドは、多くの窒素不純物を含み、地球内部の複雑な成長履歴を反映して、結晶内に多くの歪や結晶欠陥を持ち、結晶によるバラツキも大きい。天然ダイヤモンドからは、不純物や結晶欠陥を含まない高い品質の結晶を安定入手することはほとんど不可能である。天然ダイヤモンドが持つこうした結晶欠陥や不純物は破壊の起点となる。そのため、従来の天然ダイヤモンドを用いた工具は、品質が安定せず、性能や寿命が大きくバラついていた。
- [0007] これに対し、ダイヤモンドが熱力学的に安定な高圧高温条件で育成される合成ダイヤモンド単結晶は、天然ダイヤモンドよりはるかに結晶性に優れ、品質も安定している。しかし、通常の合成ダイヤモンドは、窒素を孤立置換型不純物として数十ppmから数百ppm含み(Ib型)、各種の特性に影響を及ぼす。特に、紫外域と赤外域に窒素不純物による強い吸収が生じる。また、この窒素不純物は結晶中に不均一に分布しており、このため、結晶内部に少なからず歪が生じる。
- [0008] また人工合成ダイヤモンドでは、窒素不純物を孤立置換型不純物として含むIb型のダイヤモンドが一部で切削工具やナイフなどに用いられている。人工合成ダイヤモ

ンドは、品質の安定性は天然ダイヤモンドよりもはるかに優れるが、工具の特性を左右する刃立性、耐摩耗性は十分とはいえなかった。

- [0009] ところで、温度差法により合成されたダイヤモンドは、特許文献2ないし特許文献6等にも記載されているように、特別の窒素ゲッターを添加された溶媒金属を使用しない限り、溶媒中の窒素が結晶内に取り込まれて黄色く着色してしまう。
- [0010] この窒素は原子置換型の不純物であり、しかも窒素原子は炭素原子よりも寸法が大きいので、ダイヤモンドの立方晶の結晶構造を部分的に歪ませてしまう。その結果、ダイヤモンドの硬度や熱伝導度が低下する。
- [0011] これらの性質の低下は、工業用としての使用、特に工具の刃先として使用したときには、直接的に製品の耐研磨性や耐摩耗性等の劣化につながるだけでなく、製造過程においても問題を発生させ、ひいては間接的にも製品の性能の劣化につながる。
- [0012] すなわち、刃先にするための研磨時の摩擦で生じた熱が、熱伝導度が低下した分逃げ難くなり、刃先の先端が過度に加熱され、酸化される。このため、刃先の作用部に通常セクタと呼ばれる0.04mm程度の段差が生じ、これが刃先の作用部に生じると工具としての刃立ち性が悪くなり、製品の被削面の仕上げ精度が低下する原因となる。
- [0013] また、一層優れた機械的特性を有するものや、本来ダイヤモンドが有さない半導体特性や導電性を有するものを合成するため、特許文献9、10にも記載されているように、ダイヤモンド結晶内にホウ素(B)を混入させることもなされている。ただし、このためには、炭素源として特別なダイヤモンド粉末を必要とする等、現在の技術はまだ不十分である。
- [0014] また、ダイヤモンドの色が透明や青や赤と異なり黄色、特に濃黄色を呈すれば、宝飾品としての価値が低くなる。また光学部品やレーザ窓にも使用することが困難となる。
- [0015] 一方、窒素のダイヤモンド結晶内への侵入を防ぐため、製造時に溶媒金属中にアルミニウム(Al)、チタン(Ti)、ジルコニウム(Zr)等の窒素ゲッターを添加しておく方法が種々開発されている。これらの方法では、窒素含有量が少ない、しかも無色透

明なダイヤモンドが得られる。しかし、溶媒中に生じたこれら窒素ゲッターの炭化物がダイヤモンド結晶中に取り込まれないようにするためには、結晶の成長速度を落とす必要がある。これについても、特許文献2ないし特許文献6に記載されているように、種々工夫がなされているが、現在のところ、成長速度は最大で2mg/hrないし2.5mg/hrである。このため、製造コストが増加する。

[0016] また、半導体特性や導電性は、本来ダイヤモンドが有していない性質であるだけに、現状のものでは、まだまだ不十分である。

[0017] 以上のため、工業用、特に工具用に、不純物の窒素の含有量が少ない、そして安価な合成単結晶ダイヤモンドの開発が望まれていた。また、耐摩耗性等の機械的、物理的性質が一層優れた合成単結晶ダイヤモンドの開発が望まれていた。同じく半導体特性、適度の導電性を有する合成単結晶ダイヤモンドの開発も望まれていた。さらに、宝飾用に美しい色彩の、そして安価な合成単結晶ダイヤモンドの開発も望まれていた。また、それらの合成単結晶ダイヤモンドを使用した工具や宝飾品も要望されていた。

[0018] 以上の他、工具の刃先として使用する場合にはシャンク等工具本体へのロウ付けが容易であること等の要望を充たす技術の開発が望まれていた。

[0019] そこで、この発明の1つの目的は、従来のダイヤモンド工具よりはるかに優れた、刃立性、耐摩耗性、品質の安定性を有するダイヤモンド工具を提供することにある。

[0020] この発明の他の目的は、不純物の窒素の含有量が少なく安価で工業用に使用でき、耐摩耗性等の機械的、物理的性質に優れ、美しい色彩で、工具本体へのロウ付けが容易な合成単結晶ダイヤモンドおよび単結晶ダイヤモンドの合成方法を提供することにある。

[0021] この発明のさらに他の目的は、美しい色彩で安価な合成単結晶ダイヤモンドを用いたダイヤモンド宝飾品を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0022] 本願発明に係るダイヤモンド工具は、高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製され、結晶中ダイヤモンドの不純物量が3ppm以下である。好ましくは、該ダイヤモンド工具において、結晶中ダイヤモンドの不純物量

が0.1ppm以下である。

- [0023] 人工合成ダイヤモンドの窒素不純物は、高圧合成時に窒素ゲッターとなる成分を溶媒に添加することで除去できるが、インクルージョンを含み易くなり良質な結晶が得られなくなる。しかし、本発明者らにより、窒素ゲッターを添加しても良質な結晶が得られる方法が示された(非特許文献1)。このようにして、窒素不純物を3ppm以下に制御した高純度合成ダイヤモンド結晶(IIa型)は、不純物による結晶欠陥や歪がない。このため、硬度、強度などの機械的特性が向上し、品質のバラツキも小さくなると考えられる。また、紫外域の270nmに若干窒素不純物による吸収があるものの、それ以外は不純物による吸収がない。窒素量を0.1ppm以下にすれば270nmの吸収も見られず、紫外から、遠赤外まで透明な結晶が得られる。
- [0024] 本発明者等は、この高純度合成ダイヤモンドの機械的特性を詳細に調べたところ、天然ダイヤモンドや従来の合成ダイヤモンドに見られない特徴を有することを見いだした。
- [0025] 表1に、窒素量の異なる合成ダイヤモンド結晶の(100)面の<100>方向および<110>方向のヌープ硬度を測定した結果を示す。(100)面<100>方向のヌープ硬度は、図1に示すように、窒素量の減少とともに向上する。窒素量1ppm以下のものは、硬度10000kg/mm²以上と高硬度である。また、窒素が3ppm以下の合成ダイヤモンド結晶においては、(100)面<110>方向は正常なヌープ圧痕が形成されず、非常に硬いことがわかる。図2に、窒素量0.1ppmの合成IIa型ダイヤモンド結晶と、60〜240ppmの窒素を含むIb型ダイヤモンド結晶、および天然のIa型ダイヤモンド結晶(凝集型窒素不純物を約1000ppm含む)の(100)面上の各方位のヌープ硬度の測定結果を示す。
- [0026] [表1]

試料No.	窒素密度 (ppm)	ヌーブ硬度(kg/mm ²)	
		(100) <100>	(100) <110>
IIa-01	0	11779	*
IIa-02	0	12898	*
IIa-03	0.04	10554	*
IIa-04	0.04	11396	*
IIa-05	0.04	11950	*
IIa-06	0.05	9867	*
IIa-07	0.36	10027	*
IIa-08	0.5	10401	*
IIa-09	1.7	8474	*
IIa-10	2.6	9428	*
Ib-01	60	8607	8475
Ib-02	88	9669	7401
Ib-03	235	9479	8075

* 圧痕が形成されないため測定不可。

[0027] 天然ダイヤモンドや通常の合成ダイヤモンドは(100)面上では<100>方向が<110>方向より硬いが、不純物量3ppm以下のダイヤモンドはこれとは逆の傾向を示し、特に<110>方向は、ヌーブ圧子による圧痕が形成されず、極めて硬い。これは、合成IIa型ダイヤモンド結晶は圧子押し込みによる変形の起点となる不純物、欠陥が極めて少ないためと考えられる。なお、不純物3ppmを越えるとこの傾向は見られなくなり、天然ダイヤモンド結晶や合成Ib型ダイヤモンド結晶と同様の傾向を示すようになる。

[0028] 本発明によるダイヤモンド工具では、該ダイヤモンド工具を超精密切削バイトとすることができる。上記の低窒素含有ダイヤモンドの高い硬度により高い耐摩耗性を持つ超精密切削バイトを提供することができる。

[0029] また、本発明によるダイヤモンド工具では、該ダイヤモンド工具をマイクロームナイフやサージカルナイフなどのダイヤモンドナイフとする事ができる。上記の低窒素含有ダイヤモンドの高い硬度と低欠陥により優れた刃立ち性を持つダイヤモンドナイフを提供することができる。

[0030] 同じく本発明によるダイヤモンド工具では、該ダイヤモンド工具を線引き用ダイスや

ダイヤモンドスタイラスとする事ができる。上記の低窒素含有ダイヤモンドの高い硬度と低欠陥により耐摩耗性に優れ、欠陥の少ない線引き用ダイスを提供することができる。

[0031] さらに、本発明によるダイヤモンド工具では、該ダイヤモンド工具をドレッサーとする事ができる。上記の低窒素含有ダイヤモンドの高い硬度と低欠陥により、耐摩耗性に優れ、刃立ち性の良いドレッサーを提供することができる。

[0032] 以上の知見に基づき、不純物量が3ppm以下、好ましくは0.1ppm以下で、結晶欠陥の少ない合成ダイヤモンドを用いて工具を作製した。不純物量の低減は、高純度な炭素源、Fe-Co溶媒を用い、溶媒にTiなどの窒素ゲッターを添加することで可能である。また、線状の転位欠陥は、低欠陥ダイヤモンド結晶から切り出した結晶を種にすることで、転位欠陥を除去できる。

[0033] 本発明に係る合成単結晶ダイヤモンドは、1つの局面では、超高压高温下において温度差法によって合成される合成単結晶ダイヤモンドであって、結晶中に原子置換型で侵入したニッケルを含有することを特徴とする。

[0034] 本発明においては、溶媒中にニッケルを多く含有させたため、淡緑色を呈する合成単結晶ダイヤモンドとなる。併せて、合成単結晶ダイヤモンド中に原子置換型で侵入する窒素が減少するため、結晶歪が小さくなり、合成単結晶ダイヤモンドの硬度、耐摩耗性が向上する。

[0035] 含有窒素量が減少することにより、工具等に使用した場合、刃先へ加工する時の過度の過熱に基づく酸化による劣化が抑制されるため、刃立ち性が向上する。

[0036] ニッケル含有量は、0.01-10ppmであることが好ましい。ニッケル含有量が10ppm以下であれば、合成単結晶ダイヤモンドの硬度、耐摩耗性、刃立ち性に悪影響を及ぼさず、また合成単結晶ダイヤモンドに美しい淡緑色を呈させる。また、10ppmを超えると、過剰な歪のため、本願発明の作用、効果が発揮しにくく、色も黒くなる。一方、ニッケル含有量が0.01ppm未満であると、合成単結晶ダイヤモンドの強度等の機械的、物理的な品質面からは好ましいが、製造にコストと時間がかかる。これはニッケルを含む溶媒を用いると結晶の成長速度を大幅に上げることができるからである。さらに、薄い緑色を呈する面からは、ニッケルが少なくとも1ppm含有されているのが

好ましい。

- [0037] 窒素含有量は、0.01〜3ppmであることが好ましい。この範囲であれば、硬度や耐摩耗性の向上等の効果が十分に得られると共に、製造コストを抑えることができる。
- [0038] 本発明を、工具に使用する合成単結晶ダイヤモンドに適用することにより、硬度の向上等の効果を大きく発揮する。
- [0039] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドを工具の刃先に使用する場合、ロウ材を使用してシャンク(工具本体)に合成単結晶ダイヤモンドをロウ付けするに際して、チタンが含まれる活性ロウ材を用いることが比較的低温でロウ付けすることができるため好ましい。
- [0040] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドは、窒素含有量が極めて少なく、ニッケルを含有させているため濃黄色を呈さず淡緑色を呈する。このため、宝飾品として使用することが好ましい。
- [0041] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドを使用した工具は、高い硬度、高い耐摩耗性の工具として長寿命化等の効果を得ることができる。このような工具としては、バイト、ドレッサー等が挙げられる。また、本発明の合成単結晶ダイヤモンドを使用した宝飾品は淡緑色に輝く宝飾品として高い評価を得ることができる。
- [0042] 本発明に係る単結晶ダイヤモンドの合成方法は、超高圧高温下において温度差法によって単結晶ダイヤモンドを合成する方法であって、鉄、コバルトの少なくとも1種と、36重量%以上のニッケルと、1〜2重量%のチタンと、3〜5.5重量%の黒鉛からなる溶媒を使用することを特徴とする。
- [0043] 本発明においては、溶媒に1〜2重量%、好ましくは1.5重量%程度含有されているチタンが不純物として含まれる窒素と反応して、窒素がダイヤモンド結晶内に侵入することを阻止する。また、銅等のインクルージョンの発生を防止する元素が添加されていなくても、上記チタンがインクルージョンとしてダイヤモンド結晶内に侵入することはない。これは、溶媒中に、周期律表で銅に極めて近い位置を占めるニッケルが36重量%、好ましくは40重量%程含有されているからであると推測される。一方、ニッケルが原子置換型の不純物として10ppm以下ダイヤモンド結晶内に侵入する。
- [0044] 種結晶の種面は、(100)面であることが、結晶の成長の面等から好ましい。また、

合成温度は、原子置換型不純物としてのニッケルのダイヤモンド結晶内への適度の侵入等の面から $1380 \pm 25^\circ\text{C}$ が好ましい。

- [0045] 合成速度は、経済性、原子置換型不純物としてのニッケルのダイヤモンド結晶内への適度の侵入等の面から $3.9 \sim 4.7 \text{ mg/hr}$ (時間)であることが好ましい。
- [0046] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドは、他の局面では、超高压高温下で温度差法によって合成される合成単結晶ダイヤモンドであって、結晶中に原子置換型で侵入したホウ素とニッケルとを含有する。
- [0047] 本発明においては、溶媒中のニッケルの含有量を多くしたチタン等の窒素ゲッターとホウ素を添加したため、合成単結晶ダイヤモンド内に原子置換型で侵入する窒素が減少し、逆に原子置換型で侵入したホウ素とニッケルを含有する合成単結晶ダイヤモンドが得られる。
- [0048] 主に、含有窒素量が減少することにより、結晶歪が小さくなり、さらにホウ素を含有することにより高硬度、高耐摩耗性を有する合成単結晶ダイヤモンドが得られる。含有窒素量が減少することにより、工具等に使用した場合、刃先に加工する時の過度の過熱に基づく酸化による劣化が抑制されるため刃立ち性が向上する。また、上記合成単結晶ダイヤモンドは、ホウ素を含有するため、導電性をも有することとなる。さらに、合成単結晶ダイヤモンドは、ホウ素とニッケルを含有するため、薄青緑色を呈する。
- [0049] ホウ素量は、 $1 \sim 300 \text{ ppm}$ であることが好ましい。 300 ppm 以下であれば、溶媒金属がダイヤモンド結晶内に不純物として取り込まれることが少なく、耐摩耗性も優れていることによる。また、 300 ppm を超えると結晶が脆くなり、色も黒くなるため実用に供することが困難になることによる。また、 1 ppm 以上、特に 5 ppm を超えると、適度の薄青緑色を呈し、併せて適度の導電性を有するからである。
- [0050] ニッケル量は、 $0.01 \sim 10 \text{ ppm}$ であることが好ましい。 10 ppm 以下であれば、薄青緑色を呈し、またチタン等の窒素ゲッターの作用と併せて窒素のダイヤモンド結晶内への原子置換型の侵入が相対的に少なくなり、このため硬度、耐摩耗性、刃立ち性が良好な単結晶ダイヤモンドになるからである。また、 10 ppm を超えると、過剰な歪が発生し、色も黒くなるからである。また、 0.01 ppm 未満であると製造に時間とコスト

がかかるからである。さらに、共存するホウ素とあいまって薄青緑色を呈する面からは、少なくとも1ppm含まれるのが好ましい。

- [0051] 窒素量は、3ppm以下であることが好ましい。3ppm以下であれば、ダイヤモンド結晶の歪が小さく、このため硬度、耐摩耗性、刃立ち性が良好になるからである。
- [0052] 本発明は、工具に使用する合成単結晶ダイヤモンドに適用することにより、優れた耐摩耗性等の効果を大きく発揮する。
- [0053] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドを工具の刃先に使用する場合、ロウ材を使用してシャンク(工具本体)にロウ付けするに際して、チタンが含まれる活性ロウ材を用いることが比較的低温でロウ付けすることが出来るため好ましい。
- [0054] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドは、窒素をほとんど含有せず、ホウ素とニッケルを含有するため、薄青緑色を呈する。このため、宝飾品として使用することが好ましい。
- [0055] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドを使用した工具は、高い硬度、高い耐摩耗性を有する工具として長寿命化等の効果を得ることができる。このような工具としては、バイト等を挙げられる。また、本発明の合成単結晶ダイヤモンドを使用した宝飾品は薄青緑に輝く宝飾品として高い評価を得ることができる。
- [0056] 本発明に係る単結晶ダイヤモンドを合成する方法は、他の局面では、超高压高温下において温度差法によって単結晶ダイヤモンドを合成する方法であって、鉄、コバルトの少なくとも1種と、36重量%以上のニッケルと、1〜2重量%のチタンと、0.1〜0.2重量%のホウ素と、3〜5.5重量%の黒鉛からなる溶媒を使用することを特徴とする。
- [0057] 本発明においては、溶媒に1〜2重量%、好ましくは1.5重量%程度(±10%)含有されている窒素ゲッター(実施の形態ではチタン)が不純物として含まれている窒素と反応して、窒素がダイヤモンド結晶内に侵入するのを阻止する。また、銅等のインクルージョンの発生を防止する元素が添加されていなくても、チタン等の窒素ゲッターがインクルージョンとしてダイヤモンド結晶内に侵入することはない。これは、溶媒中に、周期律表で銅に極めて近い位置を占めるニッケルが36重量%、好ましくは40重量%程含有されているからであると推測される。一方、ニッケルが原子置換型の

不純物として10ppm以下ダイヤモンド結晶内に侵入する。また、溶媒に0.1〜0.2重量%、好ましくは0.15重量%程度含有されているホウ素も、原子置換型の不純物として300ppm以下ダイヤモンド結晶内に侵入する。

- [0058] また、種結晶の種面は、ダイヤモンド結晶の(100)面であることが、ホウ素の均一な分散やダイヤモンド結晶の成長の面から好ましい。
- [0059] また、合成温度は、原子置換型不純物としてのニッケルおよびホウ素のダイヤモンド結晶内への適度の侵入等の面から $1350 \pm 30^\circ\text{C}$ が好ましい。
- [0060] また、合成速度は、経済性、原子置換型不純物としてのニッケルおよびホウ素のダイヤモンド結晶内への適度の侵入等の面から3.1〜3.8mg/hr(時間)であることが好ましい。
- [0061] 本発明に係るダイヤモンド宝飾品は、上述の合成単結晶ダイヤモンドを用いて作製される。

発明の効果

- [0062] 単結晶ダイヤモンドを用いる工具において、窒素不純物の量の少ない合成ダイヤモンドを用いることにより、その高硬度および低欠陥により従来のダイヤモンド工具よりはるかに優れた、刃立性、耐摩耗性、品質の安定性を有するダイヤモンド工具を提供することができる。
- [0063] 本発明の合成単結晶ダイヤモンドは、合成単結晶ダイヤモンド中に原子置換型で侵入した窒素が少く、このため結晶歪が小さくなり、硬度と耐摩耗性が向上し、好ましい工具を製造することができる。また、溶媒中にニッケルを含有させているため、速い成長速度で合成可能なため製造コストを低減することができる。また、淡緑色を呈するため、高い価値を有する宝飾品を提供することができる。
- [0064] また、本発明の合成単結晶ダイヤモンドによれば、元素置換型の不純物として結晶中に含まれる窒素の含有率が少なく、適度のホウ素を含むため耐摩耗性に優れた合成単結晶ダイヤモンドが得られる。また、工具の刃先用として有用な耐摩耗性等に優れた合成単結晶ダイヤモンドが得られる。また、適度の導電性を有する合成単結晶ダイヤモンドが得られる。また、元素置換型の不純物として結晶中にニッケルとホウ素を含有するため、宝飾用として価値の高い薄青緑色を呈する合成単結晶ダイヤモンド

ドが得られる。また、以上の合成単結晶ダイヤモンドが、低コストで得られる。

図面の簡単な説明

- [0065] [図1]合成ダイヤモンドの(100)面<100>方向のヌープ硬度を示す図である。
[図2]各種ダイヤモンドの(100)面上の各方位のヌープ硬度を示す図である。
[図3]本発明の実施の形態3における合成単結晶ダイヤモンドの合成装置の概念図である。
[図4A]本発明の実施の形態3における合成単結晶ダイヤモンドを使用した工具の刃先を示す側面図である。
[図4B]図4Aに示す工具の刃先の平面図である。
[図5]本発明の実施の形態3における合成単結晶ダイヤモンドを使用したドレスサの斜視図である。
[図6]本発明の実施の形態4における合成単結晶ダイヤモンドの合成装置の概念図である。
[図7A]本発明の実施の形態4における合成単結晶ダイヤモンドを使用した工具の刃先を示す側面図である。
[図7B]図7Aに示す工具の刃先の平面図である。

符号の説明

- [0066] 11 炭素源、12 溶媒金属、13 種結晶、14 絶縁体、15 黒鉛ヒータ、16 圧力媒体、21 合成単結晶ダイヤモンドの刃先、22 ロウ付け層、23 シャンク先端、31 合成単結晶ダイヤモンドのドレスサ、32 焼結部。

発明を実施するための最良の形態

- [0067] 以下、本発明の実施の形態について説明する。

- [0068] (実施の形態1)

高圧下の温度差法によるダイヤモンド結晶の合成において、原料に高純度黒鉛、溶媒にFe-Co溶媒を用い、窒素ゲッターとしてTiを1.5重量%、溶媒に添加し、種結晶に低欠陥結晶を用い(001)面を種面にして、圧力5.5GPa、温度1350℃、合成時間70時間で、約0.8カラットの高純度IIa型ダイヤモンド単結晶を合成した。

- [0069] 得られたダイヤモンド結晶は、無色透明で、紫外可視スペクトル、赤外スペクトルと

も、窒素などの不純物による吸収がほとんど認められず、不純物0.1ppm以下の高純度IIa型結晶であった。また、偏光顕微鏡観察より、内部歪がほとんどなく、X線トポグラフ観察により、結晶欠陥がほとんどないことを確認した。

[0070] 上記のようにして得られたダイヤモンド結晶から次のようにしてダイヤモンドバイトを作製した。該ダイヤモンド結晶を、長さ3mm、幅1mm、厚み1mmに加工し、これをバイトシャンクにロウ付けした。この際、ロウ付けにはTiが含まれる活性ロウ材を使用すると比較的低温でロウ付けすることができ、単結晶ダイヤモンド表面の熱劣化が少なくなるため好ましい。更にダイヤモンド素材とシャンクの間のロウ層は100 μ m以上あれば作製されたバイト先端部にロウ付けの際の残留応力が少なくなるので好ましい。また、単結晶ダイヤモンド素材のロウ付け面を確保するため上下面は(100)面とした。その後、刃先を先端R10 μ m、先端角45度のダイヤモンドバイトを作製した。

[0071] その場合先端部の面方位は(110)面とすれば研磨加工が容易となり工具先端部の強度、刃立ち性を良くすることができる。また、ダイヤモンドバイト作製にはダイヤモンド遊離砥粒を鑄鉄盤の上に付し高速回転するスカイフ研磨装置を使用した。以上のようにして作製したダイヤモンドバイトの刃先先端部は数ミクロンあるいはそれ以下の大きさの微小欠けが全く確認できなかった。このダイヤモンドバイトを精密旋盤に取り付け回転速度800rpm、送り速度0.3 μ m/r、切り込み1 μ mの条件で金型表面にメッキ処理された金属Ni部分を切削した結果、送りマークも見られず高精度な鏡面が得られた。

[0072] (実施の形態2)

窒素ゲッターのTiの添加量を1.5重量%として、他は実施の形態1と同様にして、約0.8カラットの高純度IIa型ダイヤモンド単結晶を合成した。得られたダイヤモンド結晶は、薄く黄色味があり、紫外可視スペクトルに孤立置換型の窒素不純物による吸収が若干見られ、窒素不純物量は約2.8ppmであった。偏光顕微鏡観察より、内部歪がほとんどなく、X線トポグラフ観察により結晶欠陥がほとんどないことを確認した。

[0073] 上記のようにして得られたダイヤモンド結晶から、実施の形態1と同様にしてダイヤモンドバイトを作製した。このダイヤモンドバイトの刃先先端部は数ミクロンあるいはそ

れ以下の大きさの微小欠けが全く確認できなかった。このダイヤモンドバイトを精密旋盤に取り付け、実施の形態1と同様の条件で金型表面にメッキ処理された金属Ni部分を切削したところ、送りマークも見られず高精度な鏡面が得られた。

[0074] (比較例1)

窒素ゲッターを用いずに、他は実施の形態1と同様にしてダイヤモンドを合成した。得られたダイヤモンドは、約1カラットの窒素不純物を含んだIb型結晶で、黄色を呈していた。赤外吸収スペクトルより見積もった窒素量は約60ppmであった。この合成Ib型ダイヤモンド結晶より、実施の形態1と同様にして超精密切削バイトを作製した。実施の形態1のバイトに比べ、刃立性があまりよくなく、耐摩耗性にも劣ったものであった。

[0075] (比較例2)

天然のダイヤモンドIa型を用いて実施の形態1と同様にダイヤモンドバイトを作製した。刃先に欠陥があったためか、刃立性が悪く、切削時の摩耗も大きかった。

[0076] (実施の形態3)

次に、本発明の実施の形態3について説明する。

[0077] <合成について>

まず、ダイヤモンドの合成について説明する。

[0078] 図3に、本実施の形態のダイヤモンドの合成装置を示す。図3において、11は炭素源、12は溶媒金属、13は種結晶、14は絶縁体、15は黒鉛ヒータ、16は圧力媒体である。

[0079] 炭素源11には、黒鉛を使用した。溶媒金属12は、必須の成分としてニッケルを42重量%、窒素ゲッターとしてチタンを1.5重量%含む。

[0080] 残りは鉄が53重量%、コバルトが5重量%、黒鉛が4.5重量%であり、これらは全て粒径50から100ミクロンの高純度粉末を用いた。なお、鉄、コバルトの配合比率はかなりの自由度がある。また、種結晶としては、合成ダイヤモンドの砥粒の(100)面を種面とした。

[0081] この下で、5.5GPa、1380℃で、炭素源と種結晶の温度差は30℃として、70時間保持し、1.5カラット(1カラットは、200mgである)の単結晶ダイヤモンドを10個合成

した。

[0082] 得られた単結晶ダイヤモンドは、(100)面が大きく、紫外可視スペクトルおよび赤外スペクトルの吸収を測定して、窒素は3ppm以下であり、ニッケルは10ppm以下であることを確認した。ただし、淡緑色がついているため、ニッケルは少なくとも淡緑色がつき始める濃度である1ppmは含まれており、1.5〜2ppmは含まれているものと思われる。

[0083] また、偏光顕微鏡による観察では、内部歪がほとんどなかった。さらに、X線トポグラフによる観察では、結晶欠陥はほとんどなかった。

[0084] <工具の刃先の製造>

次に、本実施の形態の合成ダイヤモンドを、工具の刃先に使用する場合について説明する。

[0085] 上述の合成ダイヤモンドを加工して、刃先用に長さ5mm、幅1mm、厚さ1mmの合成単結晶ダイヤモンド素材を作製した。さらに、この素材をシャンクにロウ付けした。なお、このロウ付けには、チタンを含む活性ロウ材を用いた。チタンを含む活性ロウ材は、比較的低温でロウ付けが可能であり、このため単結晶ダイヤモンド表面の熱劣化が少なくなる。

[0086] また、バイト先端部に熱応力が残留しないよう、ロウ層の厚さは100 μ m以上とした。さらに、ロウ付け面を確保するため、ダイヤモンド素材の上下面は(100)面とした。

[0087] しかる後、高速回転する研磨装置を用いて、先端R100 μ m、先端角30度、すくい角20度のダイヤモンドバイトの刃先を形成した。この刃先先端は、1 μ m以上の欠けがなく、鋭利であることを確認した。

[0088] この刃先を、図4A、図4Bに示す。図4A、図4Bにおいて、21は刃先の合成単結晶ダイヤモンドである。Rは先端の直径であり、すくい角 α は20度であり、先端角 β は30度である。22は、チタンを含むロウ付け層である。23は、シャンク先端である。

[0089] このダイヤモンドバイトを精密旋盤に取付け、被切削部直径5mm、回転速度3000rpm、送り速度0.3 μ m/r、切り込み0.1 μ mの切削条件で、金属金型表面にめっきされたニッケルを精密切削し、高精度な鏡面を得た。

[0090] 従来の合成単結晶ダイヤモンドを使用したものでは、同じ切削条件での工具寿命

は58個であったが、本発明品の工具寿命は93個であった。この結果、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドは、工具の刃先用の素材として好適であることが確認できた。

[0091] <ドレッサーの製造>

次に、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドを、ドレッサーに使用する場合について説明する。

[0092] 上述の装置、方法で合成したダイヤモンドの原石を(111)面に沿って厚さ0.8mmにへき開し、レーザにて切断して、長さ3mm、幅0.8mm、厚さ0.8mmの短冊状の素材を製作した。この短冊状の素材3個をニッケルを主成分とする焼結用の粉末中に配置し、焼結した。

[0093] なお、短冊状の素材は、長面部分がへき開面(111)およびレーザ切断面(110)となり、ドレッシング面が(211)面となるようにしている。このため、短冊状の素材からなる試験片の端面がドレッシング面となるので、研磨方向<110>と平行になる。

[0094] このドレッサーを、図5に示す。図5において、31は短冊状の合成単結晶ダイヤモンド素材であり、32はその焼結部である。

[0095] このドレッサーを、砥石周速1500rpm、砥石SN80N8V51S(ノリタケ製、405×50×127mm)、切込量0.1mm/pass、送り0.5mm/revの湿式条件(研削油:ノリタケクールNK88)で、砥石の回転軸に平行な方向へ20分往復運動させてドレッシングを行って磨耗量を測定した。

[0096] また、同じ条件で従来の合成単結晶ダイヤモンドを使用したドレッサーについても磨耗量を測定した。その結果は、表2の通りであり、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドは、従来の合成単結晶ダイヤモンドより磨耗量が著しく少なく、ドレッサー素材として好適であることが確認できた。

[0097] [表2]

	面方位	ドレッシング方向	磨耗量 (10^{-3}mm^3)
従来品	(211)	<110>	13.5
本発明品	(211)	<110>	9.8

[0098] <宝飾用への使用>

最後に、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドの宝飾品への使用について説明する。

[0099] 上述の装置、方法で合成した1.55カラットのダイヤモンドを、スカイフ研磨盤によってラウンドブリリアンカット加工を施した。

[0100] 得られた0.45カラットの宝飾用のダイヤモンドは、欠け、割れは一切なく、やや緑色を呈した鮮やかなダイヤモンドであった。

[0101] (実施の形態4)

以下、本発明の実施の形態4について説明する。

[0102] <合成について>

先ず、本実施の形態のダイヤモンドの合成について説明する。

[0103] 図6に、本実施の形態の単結晶ダイヤモンドの合成装置を示す。図6において、11は炭素源であり、12は溶媒金属であり、13は種結晶であり、14は絶縁体であり、15は黒鉛ヒータであり、16は圧力媒体である。

[0104] 炭素源11には、黒鉛を使用した。溶媒金属12は、必須成分としてのニッケルを42重量%、ホウ素を0.15重量%、窒素ゲッターとしてチタンを1.5重量%含む。残りは、鉄が46.85重量%、コバルトが5重量%、黒鉛が約4.5重量%であり、これらは全て粒径50から100ミクロンの高純度粉末を用いた。なお、鉄、コバルトの配合比率は、かなりの程度変更可能である。種結晶としては、合成ダイヤモンド砥粒の(100)面を種面とした。

[0105] この下で、5.5GPa、1350℃で、炭素源と種結晶の温度差は30℃として70時間保持し、1.2カラット(1カラットは、200mgである)の単結晶ダイヤモンドを10個合成した。

[0106] 得られた合成単結晶ダイヤモンドは、(100)面が大きく、紫外可視スペクトルおよび赤外スペクトルによると、窒素は3ppm以下であり、ホウ素は50ppm、ニッケルは10ppm以下であった。ただし、ダイヤモンド結晶の色彩は、ホウ素に起因する青色の他にニッケルに起因する緑色が混じった薄青緑であるため、ニッケルは少なくとも1ppm含まれているものと思われる。

- [0107] また、偏光顕微鏡による観察では、内部歪がほとんどなかった。さらに、X線トポグラフィによる観察では、結晶欠陥はほとんどなかった。また、ダイヤモンド単結晶の電気抵抗を測定したところ、10ないし100 $\Omega \cdot \text{cm}$ であり、適度の導電性を有しているのを確認できた。
- [0108] <工具の刃先の製造>
- 次に、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドを、工具の刃先に使用する場合について説明する。
- [0109] 上述の合成単結晶ダイヤモンドを加工して、ダイヤモンドエンドミルの刃先用に長さ5mm、幅1mm、厚さ1mmの合成単結晶ダイヤモンド素材を製作した。さらに、この素材をシャンクにロウ付けした。なお、このロウ付けには、チタンを含む活性ロウ材を用いた。このロウ材は比較的低温でロウ付けが可能であり、このため合成単結晶ダイヤモンド表面の熱劣化が少なくなる。
- [0110] また、ダイヤモンドバイト先端部に熱応力が残留しないよう、ロウ層の厚さは100 μm 以上とした。さらに、ロウ付け面を確保するため、ダイヤモンド素材の上下面は(100)面とした。
- [0111] しかる後、高速回転する研磨装置を用いて、先端R100 μm 、先端角30度、すくい角20度のダイヤモンドバイトの刃先を形成した。この刃先先端は、1 μm 以上の欠けがなく、鋭利であることを確認した。
- [0112] この刃先を、図7A、図7Bに示す。図7A、図7Bにおいて、21は刃先の合成単結晶ダイヤモンドである。Rは、先端の直径であり、すくい角 α は20度であり、先端角 β は30度である。22は、チタンを含むロウ付け層である。23は、シャンク先端である。
- [0113] このダイヤモンドバイトを精密旋盤に取付け、被切削部直径5mm、回転速度3000 rpm、送り速度0.3 $\mu\text{m}/\text{r}$ 、切り込み0.1 μm の切削条件で、金属金型表面にめっきされたニッケルを精密切削し、高精度な鏡面を得た。
- [0114] 従来の合成単結晶ダイヤモンドを使用したものでは、同じ切削条件での工具寿命は58個であったが、本発明品の工具寿命は85個であった。この結果、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドは、工具の刃先用の素材として好適であることが確認できた。

[0115] 本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドは、適度の導電性を有しているため、自動工具交換が可能な設備に取付けた場合には、工具の電気抵抗を測定することにより被削物に対する接触の有無の判断が可能になる。このため、工具の管理や製品の品質管理も容易になる。

[0116] <宝飾用への使用>

最後に、本実施の形態の合成単結晶ダイヤモンドの宝飾品への使用について説明する。

[0117] 上述の装置、方法で合成した1.2カラットの合成単結晶ダイヤモンドに、スカイフ研磨盤によってラウンドブリリアンカット加工を施した。

[0118] 得られた0.36カラットの宝飾用の合成単結晶ダイヤモンドは、欠け、割れは一切なく、やや緑色を呈した鮮やかなダイヤモンドであった。

[0119] 以上のように本発明の実施の形態について説明を行なったが、各実施の形態の特徴を適宜組合せることも当初から予定している。また、今回開示された実施の形態はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

産業上の利用可能性

[0120] 本発明は、ダイヤモンド工具、合成単結晶ダイヤモンドおよび単結晶ダイヤモンドの合成方法ならびにダイヤモンド宝飾品に有効に適用され得る。

請求の範囲

- [1] 高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製されたダイヤモンド工具において、ダイヤモンド結晶中の不純物量が3ppm以下であることを特徴とするダイヤモンド工具。
- [2] 前記ダイヤモンド結晶中の不純物量が0. 1ppm以下である、請求項1に記載のダイヤモンド工具。
- [3] 前記ダイヤモンド工具が、超精密切削バイト、マイクロームナイフ、ダイヤモンドナイフ、ダイヤモンドスタイラス、線引用ダイス、ドレッサーのいずれかである、請求項1に記載のダイヤモンド工具。
- [4] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記ダイヤモンドを工具本体に取付けた、請求項1に記載のダイヤモンド工具。
- [5] 高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製されたダイヤモンド工具において、ダイヤモンド結晶中に含まれる窒素含有量が3ppm以下で、かつ前記ダイヤモンド結晶中にニッケルを含有することを特徴とするダイヤモンド工具。
- [6] 前記ニッケルの含有量が、0. 01ppm以上10ppm以下である、請求項5に記載のダイヤモンド工具。
- [7] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記ダイヤモンドを工具本体に取付けた、請求項5に記載のダイヤモンド工具。
- [8] 高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製されたダイヤモンド工具において、ダイヤモンド結晶中に含まれる窒素含有量が3ppm以下で、かつ前記ダイヤモンド結晶中にホウ素とニッケルを含有することを特徴とするダイヤモンド工具。
- [9] 前記ホウ素の含有量が、0. 01ppm以上300ppm以下である、請求項8に記載のダイヤモンド工具。
- [10] 前記ニッケルの含有量が、0. 01ppm以上10ppm以下である、請求項8に記載のダイヤモンド工具。
- [11] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記ダイヤモンドを工具本体に取付けた、請求

項8に記載のダイヤモンド工具。

- [12] 超高压高温下において温度差法によって合成される合成単結晶ダイヤモンドであつて、
結晶中に原子置換型で侵入したニッケルを含有することを特徴とする合成単結晶ダイヤモンド。
- [13] 前記ニッケルの含有量が、0.01ppm以上10ppm以下である、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [14] 窒素の含有量が、0.01ppm以上3ppm以下である、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [15] 前記合成単結晶ダイヤモンドを工具に使用する、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [16] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記合成単結晶ダイヤモンドを前記工具の先端部(23)に取付けた、請求項15に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [17] 前記合成単結晶ダイヤモンドを宝飾品に使用する、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [18] 請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド工具。
- [19] 請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド宝飾品。
- [20] 超高压高温下において温度差法によって単結晶ダイヤモンドを合成する方法であつて、
鉄、コバルトの少なくとも1種と、36重量%以上のニッケルと、1重量%以上2重量%以下のチタンと、3重量%以上5.5重量%以下の黒鉛からなる溶媒を使用することを特徴とする単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [21] 種結晶(13)の種面は、ダイヤモンド結晶の(100)面である、請求項20に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [22] 合成温度は、 $1380 \pm 25^{\circ}\text{C}$ である、請求項20に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [23] 合成速度は、 3.9mg/hr 以上 4.7mg/hr 以下である、請求項20に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。

- [24] 超高压高温下で温度差法によって合成される合成単結晶ダイヤモンドであって、結晶中に原子置換型で侵入したホウ素とニッケルとを含有することを特徴とする合成単結晶ダイヤモンド。
- [25] 前記ホウ素の含有量は、1ppm以上300ppm以下である、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [26] 前記ニッケルの含有量は、0.01ppm以上10ppm以下である、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [27] 窒素の含有量は、3ppm以下である、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [28] 前記合成単結晶ダイヤモンドを工具に使用する、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [29] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記合成単結晶ダイヤモンドを前記工具の先端部(23)に取付けた、請求項28に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [30] 前記合成単結晶ダイヤモンドを宝飾品に使用する、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [31] 請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド工具。
- [32] 請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド宝飾品。
- [33] 超高压高温下において温度差法によって単結晶ダイヤモンドを合成する方法であって、
鉄、コバルトの少なくとも1種と、36重量%以上のニッケルと、1重量%以上2重量%以下のチタンと、0.1重量%以上0.2重量%以下のホウ素と、3重量%以上5.5重量%以下の黒鉛からなる溶媒を使用することを特徴とする単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [34] 種結晶(13)の種面は、ダイヤモンド結晶の(100)面である、請求項33に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [35] 合成温度は、 $1350 \pm 30^{\circ}\text{C}$ である、請求項33に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [36] 合成速度は、3.1mg/hr以上3.8mg/hr以下である、請求項33に記載の単結

晶ダイヤモンドの合成方法。

補正書の請求の範囲

[2005年3月15日(15.03.05)国際事務局受理：出願当初の請求の範囲1, 5及び8は補正された；他の請求の範囲は変更なし。(4頁)]

- [1] (補正後) 高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製されたダイヤモンド工具において、ダイヤモンド結晶中の不純物量が3ppm以下であり、該工具の刃先先端部の面方位が(110)面であることを特徴とするダイヤモンド工具。
- [2] 前記ダイヤモンド結晶中の不純物量が0.1ppm以下である、請求項1に記載のダイヤモンド工具。
- [3] 前記ダイヤモンド工具が、超精密切削バイト、ミクロームナイフ、ダイヤモンドナイフ、ダイヤモンドスタイラス、線引用ダイス、ドレッサーのいずれかである、請求項1に記載のダイヤモンド工具。
- [4] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記ダイヤモンドを工具本体に取付けた、請求項1に記載のダイヤモンド工具。
- [5] (補正後) 高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製されたダイヤモンド工具において、ダイヤモンド結晶中に含まれる窒素含有量が3ppm以下であり、該工具の刃先先端部の面方位が(110)面であり、かつ前記ダイヤモンド結晶中にニッケルを含有することを特徴とするダイヤモンド工具。
- [6] 前記ニッケルの含有量が、0.01ppm以上10ppm以下である、請求項5に記載のダイヤモンド工具。
- [7] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記ダイヤモンドを工具本体に取付けた、請求項5に記載のダイヤモンド工具。
- [8] (補正後) 高圧下の温度差法により人工的に合成された単結晶ダイヤモンドを用いて作製されたダイヤモンド工具において、ダイヤモンド結晶中に含まれる窒素含有量が3ppm以下であり、該工具の刃先先端部の面方位が(110)面であり、かつ前記ダイヤモンド結晶中にホウ素とニッケルを含有することを特徴とするダイヤモンド工具。
- [9] 前記ホウ素の含有量が、0.01ppm以上300ppm以下である、請求項8に記載のダイヤモンド工具。
- [10] 前記ニッケルの含有量が、0.01ppm以上10ppm以下である、請求項8に記載の

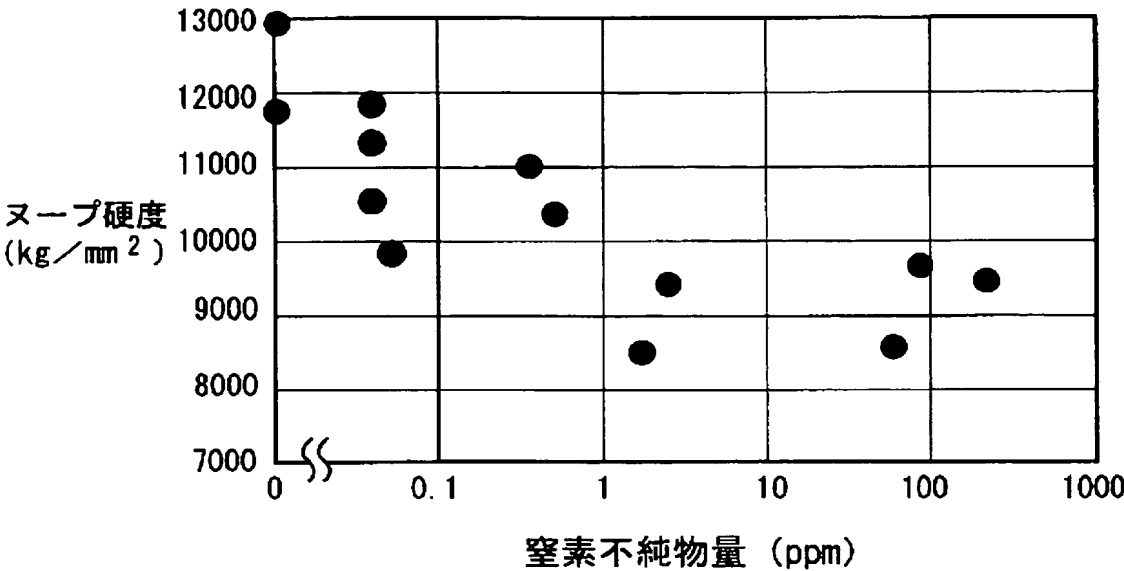
- ダイヤモンド工具。
- [11] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記ダイヤモンドを工具本体に取付けた、請求項8に記載のダイヤモンド工具。
- [12] 超高压高温下において温度差法によって合成される合成単結晶ダイヤモンドであって、
結晶中に原子置換型で侵入したニッケルを含有することを特徴とする合成単結晶ダイヤモンド。
- [13] 前記ニッケルの含有量が、0.01ppm以上10ppm以下である、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [14] 窒素の含有量が、0.01ppm以上3ppm以下である、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [15] 前記合成単結晶ダイヤモンドを工具に使用する、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [16] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記合成単結晶ダイヤモンドを前記工具の先端部(23)に取付けた、請求項15に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [17] 前記合成単結晶ダイヤモンドを宝飾品に使用する、請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [18] 請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド工具。
- [19] 請求項12に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド宝飾品。
- [20] 超高压高温下において温度差法によって単結晶ダイヤモンドを合成する方法であって、
鉄、コバルトの少なくとも1種と、36重量%以上のニッケルと、1重量%以上2重量%以下のチタンと、3重量%以上5.5重量%以下の黒鉛からなる溶媒を使用することを特徴とする単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [21] 種結晶(13)の種面は、ダイヤモンド結晶の(100)面である、請求項20に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [22] 合成温度は、 $1380 \pm 25^{\circ}\text{C}$ である、請求項20に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。

- [23] 合成速度は、3.9mg/hr以上4.7mg/hr以下である、請求項20に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [24] 超高压高温下で温度差法によって合成される合成単結晶ダイヤモンドであって、結晶中に原子置換型で侵入したホウ素とニッケルとを含有することを特徴とする合成単結晶ダイヤモンド。
- [25] 前記ホウ素の含有量は、1ppm以上300ppm以下である、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [26] 前記ニッケルの含有量は、0.01ppm以上10ppm以下である、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [27] 窒素の含有量は、3ppm以下である、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [28] 前記合成単結晶ダイヤモンドを工具に使用する、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [29] チタンを含む活性ロウ材(22)により前記合成単結晶ダイヤモンドを前記工具の先端部(23)に取付けた、請求項28に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [30] 前記合成単結晶ダイヤモンドを宝飾品に使用する、請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンド。
- [31] 請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド工具。
- [32] 請求項24に記載の合成単結晶ダイヤモンドを備える、ダイヤモンド宝飾品。
- [33] 超高压高温下において温度差法によって単結晶ダイヤモンドを合成する方法であって、
鉄、コバルトの少なくとも1種と、36重量%以上のニッケルと、1重量%以上2重量%以下のチタンと、0.1重量%以上0.2重量%以下のホウ素と、3重量%以上5.5重量%以下の黒鉛からなる溶媒を使用することを特徴とする単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [34] 種結晶(13)の種面は、ダイヤモンド結晶の(100)面である、請求項33に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。
- [35] 合成温度は、1350±30℃である、請求項33に記載の単結晶ダイヤモンドの合成

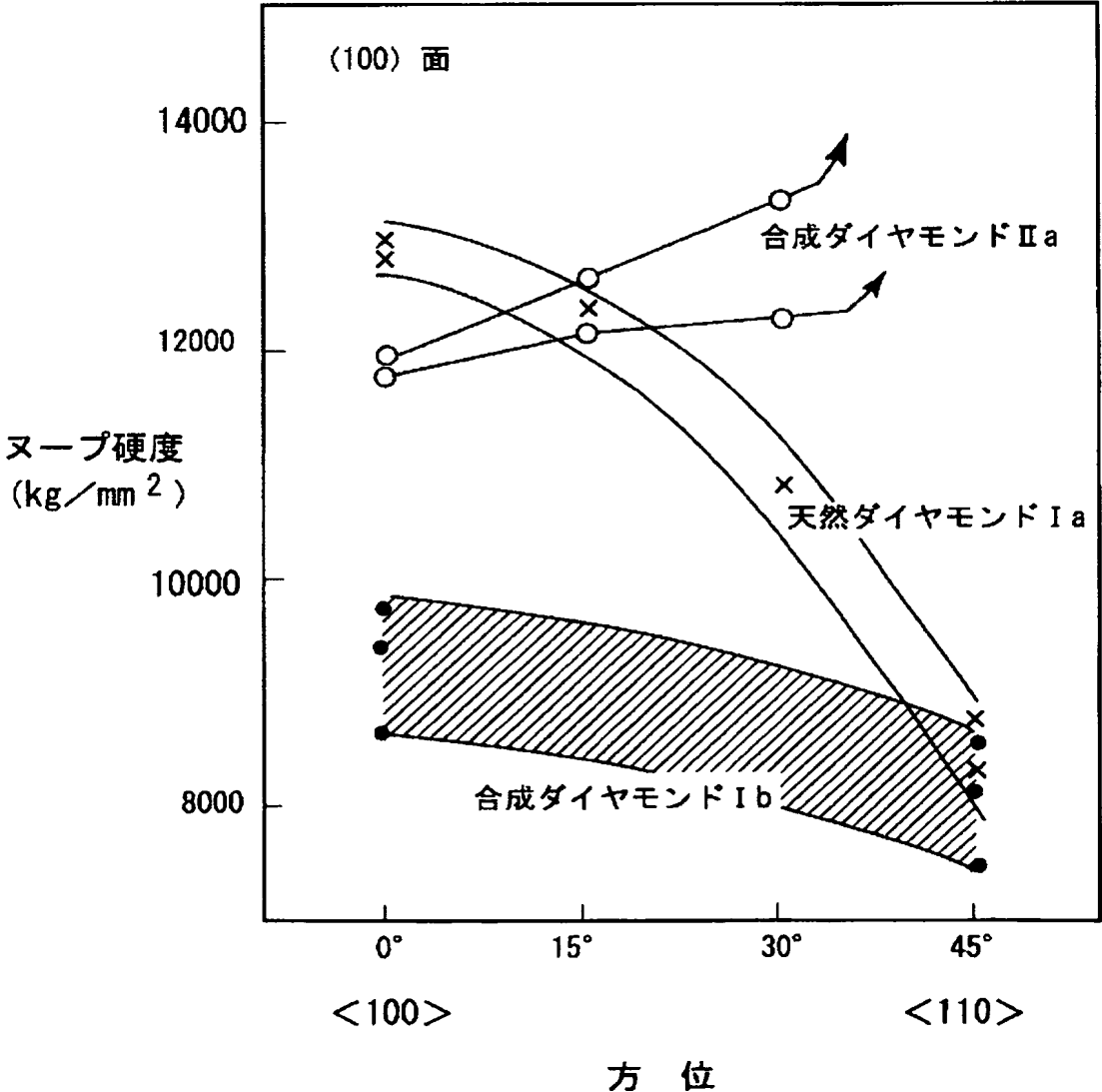
方法。

- [36] 合成速度は、3.1mg/hr以上3.8mg/hr以下である、請求項33に記載の単結晶ダイヤモンドの合成方法。

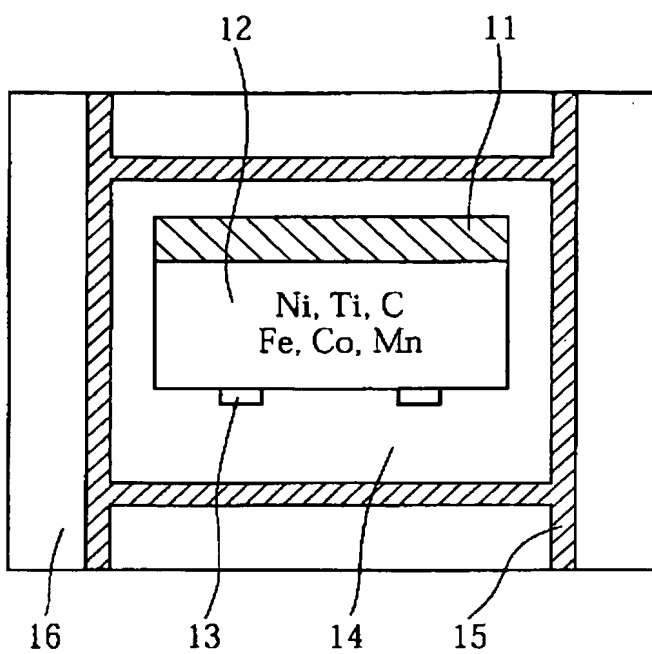
[図1]



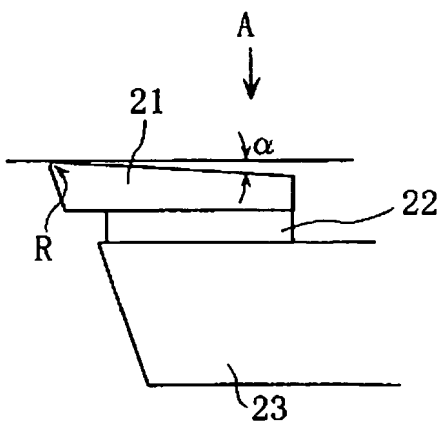
[図2]



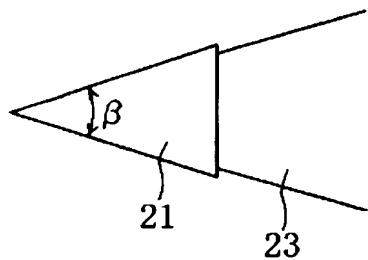
[図3]



[図4A]

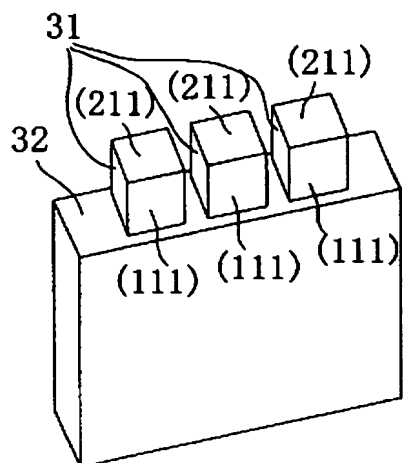


[図4B]

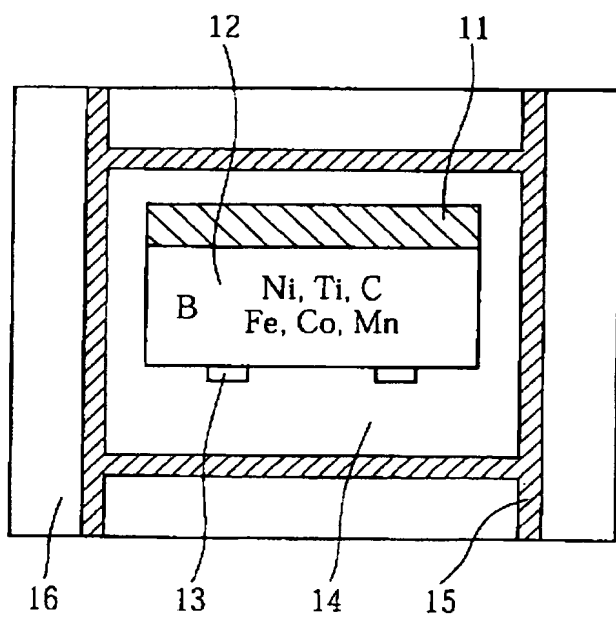


矢視A

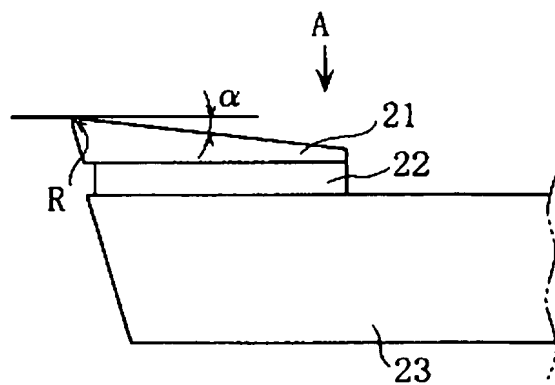
[図5]



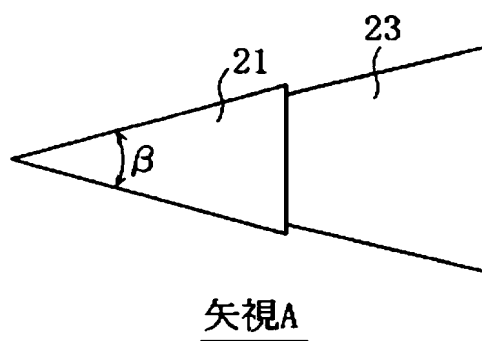
[図6]



[図7A]



[図7B]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014910

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ B23B27/20, B23B27/14, B24B53/12, C30B29/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ B23B27/20, B23B27/14, B24B53/12, C30B29/04, B01J3/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 7-116494 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.),	1-20, 22-33,
Y	09 May, 1995 (09.05.95), Full text; all drawings & EP 647590 A2	35, 36 21, 34
Y	JP 3-217226 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 25 September, 1991 (25.09.91), Claims (Family: none)	21, 34
A	JP 11-300194 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 02 November, 1999 (02.11.99), Full text; all drawings (Family: none)	1-36

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 December, 2004 (27.12.04)

Date of mailing of the international search report
18 January, 2005 (18.01.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014910

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-100297 A (Tokyo Gas Co., Ltd.), 13 April, 1999 (13.04.99), Full text; all drawings & EP 894766 A1	1-36
A	JP 2003-137686 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 14 May, 2003 (14.05.03), Full text; all drawings (Family: none)	1-36
A	JP 5-058786 A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 09 March, 1993 (09.03.93), Full text; all drawings & WO 92/14542 A1	1-36

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷ B23B27/20, B23B27/14, B24B53/12, C30B29/04

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁷ B23B27/20, B23B27/14, B24B53/12, C30B29/04, B01J3/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996

日本国公開実用新案公報 1971-2004

日本国実用新案登録公報 1996-2004

日本国登録実用新案公報 1994-2004

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 7-116494 A (住友電気工業株式会社) 199 5. 05. 09, 全文, 全図 & E P 647590 A2	1-20, 22-33 , 35, 36
Y		21, 34
Y	J P 3-217226 A (住友電気工業株式会社) 199 1. 09. 25, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	21, 34
A	J P 11-300194 A (住友電気工業株式会社) 19 99. 11. 2, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-36

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27. 12. 2004

国際調査報告の発送日

18. 1. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

所村 美和

3 C

3 2 1 5

電話番号 03-3581-1101 内線 3324

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 11-100297 A (東京瓦斯株式会社) 199 9.04.13, 全文, 全図 & EP 894766 A1	1-36
A	JP 2003-137686 A (住友電気工業株式会社) 2003.05.14, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-36
A	JP 5-058786 A (住友電気工業株式会社) 199 3.03.09, 全文, 全図 & WO 92/14542 A 1	1-36